بررسی تاثیر غلظت نیترید بور و ضخامت حفاظ بر قدرت حفاظ سازی کامپوزیتهای پلیمری بر پایه پلی اتیلن سنگین

زهرا رفیعی سرمزده (۱و۲)، سید جواد احمدی (۳)، سید مرتضی زاهدی دیزجی(۱)، سید حسن جعفری(۲)

۱ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده پلاسما و گداخت هسته‌ای؛

۲ دانشگاه تهران، دانشکده مهندسی شیمی؛

۳ سازمان انرژی اتمی ایران، پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده چرخه سوخت هسته‌ای؛

چکیده:

در تحقیق حاضر، میکروکامپوزیت پلی‌اتیلن سنگین/نیترید بور به روش اختلاط مذاب از میکروصفحات نیترید بور به عنوان جاذب نوترون تهیه شده است. اثر تغییر غلظت میکروصفحات نیترید بور (محتوای ۱، ۳ و ۵٪ وزنی) و ضخامت حفاظ ساخته شده (۲، ۷ و ۹ mm) از این میکروکامپوزیت بر قدرت حفاظ سازی پرتونوترونی مورد بررسی قرار گرفته و نتایج با پلی‌اتیلن سنگین خالص مقایسه گردید. نتایج به دست آمده نشان می‌دهد افزایش محتوای جاذب موجب کاهش اکتیویته نسبی و افزایش قدرت حفاظ سازی می‌گردد. با افزایش ضخامت حفاظ، میزان شار خروجی از حفاظ کاهش می‌یابد. روند کاهش بین ضخامت‌های ۲ تا ۷ mm شدید بوده اما با افزایش ضخامت روند کاهش شار با شیب ملایم‌تری روی می‌دهد.

کلمات کلیدی: پلی‌اتیلن سنگین، نیترید بور، میکروکامپوزیت، حفاظ سازی

The Investigation of boron nitride concentration and the shield thickness effects on the shielding power of polymeric composites based on high density polyethylene (HDPE)

Zahra Rafiei-Sarmazdeh[1,2], Seyed Javad Ahmadi[3], Seyed Morteza Zahedi-Dizaji[1], Seyed Hassan Jafari[2]

[1] School of Chemical Engineering, College of Engineering, University of Tehran, Tehran, Iran

[2] Plasma and Nuclear Fusion Research School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran, Iran

[3] Nuclear Fuel Cycle School, Nuclear Science and Technology Research Institute, Tehran, Iran

Abstract:

In the present study, high density polyethylene (HDPE)/ boron nitride micro-composites were prepared by the melt mixing method by using boron nitride micro-flakes as neutrons absorbent. The effect of the concentrations of boron nitride (content of 1, 3 and 5 wt%) and the thickness of the neutron shield (2, 7 and 9 mm) were investigated and the results were compared with the pure HDPE. The results show that the increasing of the adsorbent content reduces relative activity and increases the neutron shielding. By increasing the thickness of the shield, the output flux of shield decreases. The reduction trend is intense between the thicknesses 2 to 7 mm, but the flux changes with a slightly slop as increase the thickness.

Keywords: High density polyethylene, Boron nitride, Micro-composite, Shielding.

مقدمه :

بتن به عنوان ماده کند کننده نوترون سال‌های زیادی است که به عنوان حفاظ مورد استفاده قرار می‌گیرد. اثر افزودن سه نوع ترکیب بوردار تجاری (اسید بوریک، فریت بوریک[۱] و بوراکس[۲]) روی خواص حفاظتی نوعی بتن بررسی شد[۱]. در سال‌های اخیر اما با توجه به وزن زیاد حفاظ‌های بتنی و مشکلات همراه با قالب‌گیری آن، پژوهش‌ها بیش‌تر روی یافتن حفاظ‌های کامپوزیت پلیمری متمرکز شده است. در سال ۲۰۰۲ دو پژوهش روی خواص حفاظتی کامپوزیت بر پایه لاستیک طبیعی[۳] حاوی کاربید بور و اسید بوریک در برابر نوترون-های حرارتی گزارش شد[۲, ۳]. سوکگاوا[۴] ساخت حفاظ نوترونی از جنس رزین‌های اپوکسی حاوی ذرات بور را گزارش داد که علاوه بر انعطاف‌پذیری، در برابر گرما نیز مقاوم است. در ساخت این کامپوزیت از کاربید بور و کلمانیت[۵] با ترکیب ۱ و ٦٪ جرمی استفاده شده است. نتایج این گروه نشان داده است که این رزین میرایی در حد پلی‌اتیلن خالص دارد[٤].

گروه تحقیقاتی هریسون[٦] از ذرات کاربید و نیترید بور (۱۰-۷ μm) به عنوان ماده تقویت کننده استفاده کرده است. میزان میرایی برای نوترون‌هایی با انرژی ٦۰۰ MeV به ازاء نمونه‌هایی با ضخامت جرمی ٦/٥ g/cm^2 حدود ۹۰٪ است[٥, ٦]. نتایج گروه تحقیقاتی یاسین[۷] نشان داد که پلی‌اتیلن سنگین دارای بالاترین میزان میرایی است که به علت تفاوت در دانسیته و بلورینگی زمینه پلیمری است[۷]. در پژوهش گزارش شده در سال ۲۰۱۱ از بوریک اسید به عنوان ماده جاذب در کامپوزیت بر پایه پلی‌اتیلن استفاده شد[۸]. نتایج نشان داد که حفاظ حاوی ۱٥٪ وزنی اسید بوریک با ضخامت ۲۰ mm ضریب عبور ۰/٤ را داراست و ٦۰٪ شار نوترونی چشمه ^{252}Cf جذب شده است. به دلیل تجمع ذرات در درصد وزنی بالاتر این حفاظ ضریب عبور بیش‌تری را نشان می‌دهد. هانگ[۸] [۹]، از نیترید بور توده (۱-۰/٥ μm) برای ساخت کامپوزیت بر پایه پلی-اتیلن سنگین کرده‌اند. پلی‌اتیلن خالص ضریب عبور نوترون ۰/۷٦٥ دارد. با افزودن نیترید بور فاکتور عبور کاهش می‌یابد. با این حال مقدار ضریب عبور علی‌رغم انتظار با افزایش ترکیب درصد افزایش یافته که ممکن است به علت چسبندگی سطح مشترک بین پلیمر و نیترید بور باشد. سلطانی اثر اندازه ذرات و درصد وزنی کاربید بور را روی خواص حفاظتی میکرو و نانوکامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سنگین بررسی نموده است. کاهش اندازه ذرات خواص منجر به بهبود حفاظتی می‌شود[۱۰].

روش کار:

---

[1] Boric Frit
[2] Borax ($Na_2B_4O_7$)
[3] Natural Rubber
[4] Sukegawa
[5] Colemanite
[6] Harrison
[7] Yasin
[8] Hong

پلی‌اتیلن سنگین مورد استفاده تولید پتروشیمی جم و با گرید HM 5010 T2N, EX3 است که با کد ساده EX3 شناخته می‌شود. در این پژوهش جهت تهیه کامپوزیت‌ها از روش اختلاط مذاب استفاده شده است. تمامی نمونه‌ها در مخلوط کن داخلی برابندر[1] ساخت کشور آلمان تهیه شدند. قابل ذکر است از نیترید بور توده ساخت شرکت آلدریچ برای ساخت کامپوزیت ها با محتوای وزنی ۰/۵، ۱، ۲، ۳، ۵، ۱۰ و ۱۵ درصد وزنی نیترید بور استفاده شد. برای ساخت نمونه‌ها دما در ۱۸۰ °C، با سرعت ۶۰ rpm تنظیم و در ابتدا پلی-اتیلن به مخلوط کن افزوده شده، بعد از گذشت ۹۰ s و ثابت شدن گشتاور، تقویت کننده نیترید بور به سیستم افزوده شد و به سیستم ۸/۵ min دیگر زمان داده شد تا اختلاط به طور کامل صورت پذیرد. برای ساخت نمونه‌های مورد نیاز از دستگاه پرس Laboratory Platen Press مدل P200P ساخت شرکت Dr. Collin کشور آلمان استفاده شد.

برای بررسی خواص نوترونی از روش فعال‌سازی پولک طلا استفاده شد که دقیق‌ترین و رایج‌ترین تکنیک در تعیین اندازه‌گیری شار نوترونی محسوب می‌شود. در ابتدا جرم هر پولک اندازه‌گیری و سپس پشت هر نمونه کامپوزیتی در معرض پرتو، پولکی تعبیه شد. دیسک‌هایی کامپوزیتی به قطر ۲/۵ cm و با ضخامت‌های مورد نظر از میکروکامپوزیت‌های حاوی نیترید بور تهیه شد. در مرحله اصلی کار، پس از به صفر رساندن قدرت راکتور، نمونه‌ها در کانال مرکزی اولین لایه ستون گرافیتی و در دهانه ورودی ستون حرارتی به مدت ۹۰ دقیقه و قدرت ۳ MW در دمای محیط پرتودهی شدند. پولک‌ها پس از پرتودهی و سرد شدن با استفاده از آشکارساز نیمه رسانای ژرمانیوم با خلوص بالا توسط نرم‌افزار OMNIGAM مورد شمارش قرار گرفتند و اکتیویته بر حسب بکرل گزارش شد. در نهایت اکتیویته نسبی که نسبت اکتیویته هر پولک نسبت به پولک طلای مرجع است، محاسبه شد.

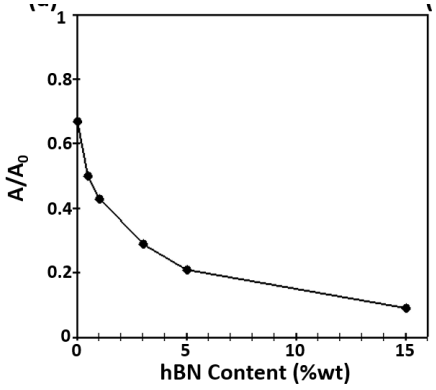
نتایج:

به منظور طراحی یک حفاظ نوترونی کامپوزیتی بر پایه پلی‌اتیلن سنگین، اساس کار بر حضور میکروصفحات نیترید بور به عنوان جاذب نوترونی قرار گرفت. ترکیبات بور نسبت به دیگر جاذب‌های نوترونی ارزان‌تر است که هم در بازه نوترون‌های حرارتی و هم فوق حرارتی از سطح مقطع جذب بالایی برخوردار است. از طرف دیگر یکی از مزیت‌های استفاده از ترکیبات بور در مقایسه با کادمیوم، ایجاد گاماهای ثانویه با انرژی بسیار پایین‌تر است. هم‌چنین بسیار مبرهن است، در صورتی که به جای ترکیبات بور طبیعی از ایزوتوپ بور۱۰ به عنوان جاذب نوترونی استفاده شود، مسلماً قدرت حفاظ‌سازی حفاظ طراحی شده افزایش خواهد یافت. نمونه‌ها در چندین مرحله مجزا مورد پرتودهی قرار گرفتند که در هر مرحله یک پولک نیز به عنوان شاهد انتخاب و به منظور تعیین شار مطلق نوترونی مورد پرتودهی قرار گرفت و اکتیویته دیگر پولک‌ها

[1] Brabender

نسبت به پولک شاهد در آن مرحله از پرتودهی برازش شد. در ضمن سعی بر آن شد نمونه‌های مرتبط، همگی در یک مرحله مورد پرتودهی قرار گیرند.

به منظور بررسی تاثیر افزایش غلظت جاذب نوترونی بر قدرت حفاظ‌سازی نوترونی، نمونه‌های دیسکی شکل از کامپوزیت‌های تقویت شده با نیترید بور توده و نانوصفحات آن در درصدهای وزنی مختلف تولید شدند. ضخامت همه نمونه‌ها ۷ mm انتخاب شد و در نهایت اکتیویته پولک مرتبط با هر نمونه کامپوزیتی نسبت به پولک طلای مرجع محاسبه شد. شکل ۱ و جدول ۱ نتایج این آنالیز را برای محتوای وزنی ۰/۵، ۱، ۳، ۵ و ۱۵٪ نیترید بور توده نشان می‌دهد. لازم به ذکر است، اکتیویته پولک متناظر با هر یک از نمونه‌های فوق، معیاری از شدت شار عبور کرده از نمونه خواهد بود. هم‌چنین اکتیویته پولک شاهد نیز معیاری از شدت شار برخوردی (شار اولیه) به سطح نمونه‌هاست.



شکل ۱- تاثیر محتوای وزنی نیترید بور بر حفاظ‌سازی کامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سنگین با ضخامت ۷ mm

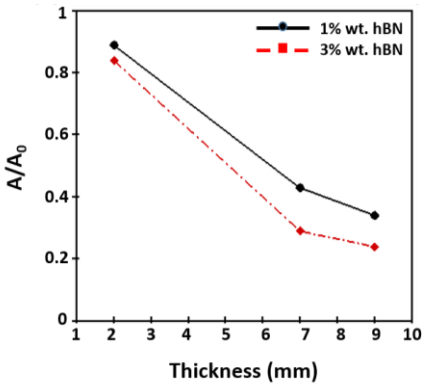
جدول ۱- نتایج تاثیر محتوای وزنی نیترید بور بر اکتیویته نسبی کامپوزیت‌های پلی‌اتیلن سنگین با ضخامت ۷ mm

نمونه	محتوای جاذب (%wt.)	اکتیویته نسبی
HD	–	۰/٦٧
HD/hBN	۰/۵	۰/۵
	۱	۰/٤٣
	۳	۰/۲۹
	۵	۰/۲۱
	۱۵	۰/۰۹

نتایج آنالیز، اکتیویته نسبی ۰/٦٧ را برای پلی‌اتیلن سنگین نشان می‌دهد. همان‌گونه که انتظار می‌رفت با افزایش محتوای بور به واسطه افزایش درصد وزنی جاذب اکتیویته نسبی کامپوزیت نیز کاهش می‌یابد. با وارد

کردن ۱٪ وزنی از نیترید بور میزان اکتیویته نسبی نسبت به پلی‌اتیلن خالص ۲۵٪ کاهش می‌یابد. با توجه به شکل ۱ روند نزولی میزان اکتیویته نسبی در درصدهای وزنی پایین از نیترید بور توده، شیب بیش‌تری نسبت به درصدهای بالا دارد. به طوری که با افزودن ۳٪ وزنی نیترید بور توده، میزان کاهش اکتیویته نسبت به پلی-اتیلن خالص ۵۷٪~ است. این در حالی است که با افزودن ۱۵٪ وزنی نیترید بور کاهش ۸۶٪ در اکتیویته نسبی دیده می‌شود. علت این امر را می‌توان به میزان پراکنش صفحات نسبت داد. در درصدهای پایین وزنی، میزان کلوخه شدن صفحات کم بوده و لذا امکان جذب نوترون‌های حرارتی بالاست و لذا اکتیویته کاهش می‌یابد. با افزایش محتوای نیترید بور و تجمع صفحات سطح، سطح برهم‌کنش ذرات با نوترون کم‌تر شده و کاهش میزان اکتیویته با شیب کم‌تری صورت می‌گیرد.

تاثیر افزایش ضخامت بر تضعیف شار خروجی از حفاظ کامپوزیتی (تضعیف اکتیویته پولک)، با بررسی قدرت حفاظ‌سازی نمونه‌های کامپوزیت با ضخامت متناظر ۲، ۷ و ۹ mm حاوی نیترید بور بررسی شد. در این آنالیز به منظور هر چه بهتر نشان دادن تاثیر ضخامت، قدرت حفاظ‌سازی در غلظت‌های ۱ و ۳٪ وزنی بررسی شد. شکل ۲ و جدول ۲ تاثیر افزایش ضخامت را بر قدرت حفاظ‌سازیِ حفاظ کامپوزیتی بر پایه پلی-اتیلن سنگین حاوی نیترید بور نشان می‌دهد.



شکل ۲- تاثیر ضخامت حفاظ بر حفاظ‌سازی کامپوزیت‌های حاوی نیترید بور در محتوای ۱ و ۳٪ وزنی

جدول ۲- نتایج تاثیر ضخامت حفاظ بر حفاظ‌سازی کامپوزیت‌های حاوی نیترید بور در محتوای ۱ و ۳٪ وزنی

نمونه	محتوای جاذب (%wt.)	ضخامت (mm)	اکتیویته نسبی
HD/hBN	۱	۲	۰/۸۹
		۷	۰/٤۳
		۹	۰/۳٤
	۳	۲	۰/۸٤

۷	۰/۲۹
۹	۰/۲٤

همان‌گونه که از شکل ۲ نیز مشخص است با افزایش ضخامت حفاظ، میزان شار خروجی از حفاظ کاهش می‌یابد. روند کاهش بین ضخامت‌های ۲ تا ۷ mm شدید بوده اما با افزایش ضخامت روند کاهش شار با شیب ملایم‌تری روی می‌دهد. هم‌چنین روند تغییرات شار خروجی در درصدهای وزنی بررسی شده مشابه می‌باشد. نکته قابل توجه در بررسی این پارامتر آن است که در ضخامت پایین (۲ mm) رفتار حفاظ سازی کامپوزیت‌های تقویت شده با ۱ و ۳٪ وزنی از نیترید بور توده تقریباً برابر است. علت این امر آن است که به دلیل ضخامت کم حفاظ، نوترون‌ها در طی برخوردهای متوالی با هسته‌های هیدروژن و کاهش سرعت، فرصت چندانی برای جذب توسط بور را ندارند و احتمای خروج آن‌ها از کامپوزیت بدون جذب افزایش می‌یابد و از این رو تغییر درصد وزنی جاذب تاثیر زیادی بر قدرت حفاظ سازی در ضخامت‌های کم ندارد. بررسی این آزمون برای نمونه پلی‌اتیلن خالص با ضخامت ۲ mm اکتیویته نسبی ۰/۹۷ نشان داد. با مقایسه این نتیجه با نتایج گزارش شده در جدول ۲ مشاهده می‌گردد که رفتار حفاظ‌سازی نمونه حاوی ۱٪ وزنی نیترید بور توده در همین ضخامت تفاوت کمی با پلی‌اتیلن خالص دارد.

بحث ونتیجه گیری :

کامپوزیت‌های حاوی میکروصفحات نیترید بور از طریق روش اختلاط مذاب سنتز شدند. عملکرد میکروکامپوزیت‌های تهیه شده با پلی‌اتیلن خالص مقایسه شدند. نتایج نشان داد که با افزایش غلظت جاذب نوترونی، قدرت حفاظ سازی کامپوزیت افزایش می‌یابد. افزایش ضخامت حفاظ هم موجب افزایش قدرت حفاظ سازی می‌شود با این حال درصد تغییر قدرت حفاظ سازی در ضخامت های پایین بیشتر است. اما نهایتا آن‌چه تعیین کننده ساختار بهینه نهایی است بایستی برآیندی از خواص نوترونی و مکانیکی حفاظ باشد که در پژوهش‌های بعدی مورد بررسی قرار خواهد گرفت.

مراجع :

۱. M. H. Kharita, S. Yousef, and et. al., "Review on the addition of boron compounds to radiation shielding concrete," Progress in Nuclear Energy, **53**, 207-211, 2011.
۲. S. E. Gwaily, M. M. Badawy, and et. al., "Natural rubber composites as thermal neutron radiation shields, I. B_4C/NR composites," Polymer Testing, **21**, 129-133, 2002.
۳. S. E. Gwaily, H. H. Hassan, and et al., "Natural rubber composites as thermal neutron radiation shields, II-H_3BO_3/NR composites," Polymer Testing, **21**, 513-517, 2002.
٤. A. M. Sukegawa, Y. Anayama, and et. al., "Flexible heat resistant neutron shielding resin," Journal of Nuclear Materials, **417**, 850-853, 2011.
٥. C. Harrison, S. Weaver, and et. al., "Polyethylene/boron nitride composites for space radiation shielding," Journal of Applied Polymer Science, **109**, 2529–2538, 2008.
٦. C. Harrison, E. Burgett, and et. al., "Polyethylene/boron composites for radiation shielding applications," American Institute of Physics, **969**, 484-491, 2008.
۷. T. Yasin and M. N. Khan, "High density polyethylene/boron carbide composites for neutron shielding," e-Polymers, **8**, 670-676, 2008.

۸. M. Zarezadeh, J. Rahighi, and et. al., "The preparation of polyethylene and mineral material composites, and experimental and theoretical (Using MCNP code) verification of their characteristics for neutron beam attenuation," presented at the International nuclear atlantic conference nuclear energy: new jobs for a better life, Brazil, 2011.
۹. J. W. Shin, J. W. Lee, and et al., "Polyethylene/boron containing composites for radiation shielding," Thermochimica Acta, **585**, 5-9, 2014.
۱۰. Z. Soltani, and et al., "Effect of particle size and percentages of boron carbide on the thermal neutron radiation shielding properties of HDPE/B_4C composite: Experimental and simulation studies," Radiation Physics and Chemistry, **127**, 182-187, 2016.